



⑮ **BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND**



**DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT**

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 101 11 992 A 1**

⑳ Aktenzeichen: 101 11 992.5
㉑ Anmeldetag: 13. 3. 2001
㉒ Offenlegungstag: 2. 10. 2002

㉓ Int. Cl.⁷:
C 08 L 23/26
C 08 L 51/06
C 08 L 67/02
C 08 L 83/02
C 08 K 3/34
D 01 F 6/46

DE 101 11 992 A 1

㉔ **Anmelder:**
Universität Stuttgart Institut für
Kunststofftechnologie, 70199 Stuttgart, DE

㉕ **Vertreter:**
HOEGER, STELLRECHT & PARTNER
PATENTANWÄLTE, 70182 Stuttgart

㉖ **Erfinder:**
Fritz, Hans-Gerhard, Prof.Dr.-Ing., 73066 Uhingen,
DE; Lü, Runsheng, Dipl.-Ing., 70569 Stuttgart, DE;
Beyreuther, Roland, Prof.Dr.-Ing.habil., 01309
Dresden, DE; Tändler, Bernhard, Dipl.-Ing., 01796
Struppen, DE; Hoffmann, Marcus, Dipl.-Ing.(FH),
01099 Dresden, DE; Vogel, Roland, Dr.-Ing., 01239
Dresden, DE

㉗ **Entgegenhaltungen:**
DE 199 34 377 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

㉘ **Polymerblend und Verfahren zu seiner Herstellung**

㉙ Um einen Werkstoff in Form eines Polymerblends auf der Basis von Polyolefin-Elastomeren, welcher sich sowohl für vernetzte als auch für thermoplastische Elastomeranwendungen eignet, so zu modifizieren, dass die mechanischen Eigenschaften des Werkstoffs bzw. der daraus hergestellten Produkte deutlich verbessert sind, wird vorgeschlagen, dass das Polymerblend eine kontinuierliche Phase aus einem Polyolefinelastomer und eine darin dispergierte Phase umfasst, welche einen Polyester, ein Polyesterelastomer und/oder einen aktiven Füllstoff umfasst, wobei der Anteil der kontinuierlichen Polyolefinelastomerphase 80 bis 95 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Polymerblends, beträgt.

DE 101 11 992 A 1

[0001] Die Erfindung betrifft einen Werkstoff in Form eines Polymerblends auf der Basis von Polyolefin-Elastomeren, welcher sich sowohl für vernetzte als auch für thermoplastische Elastomeranwendungen eignet. Außerdem betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung dieses Polymerblends.

[0002] Es ist bekannt, dass sich eine neue Werkstoffgruppe von Polyolefinelastomeren, nämlich Ethylen/Octen-Copolymere und Ethylen/Hexen-Copolymere (im Folgenden als EO-Copolymere und EH-Copolymere bezeichnet) sowohl für vernetzte als auch für unvernetzte Anwendungen eignet (W. Diegritz und O. Franssen, Kunststoffe 88 (1998) 3, S. 339–346: Polyolefinelastomere in der Fahrzeugtechnik). Diese Werkstoffe lassen sich zur Herstellung von extrudierten und spritzgegossenen Teilen wie z. B. Schläuche, Riemen, Luftführungskanäle und Dichtungsprofile sowie als Zweitkomponente beim Compoundieren von thermoplastischen Elastomer-Vulkanisaten (TPV) verwenden.

[0003] Metallocenkatalysierte EO- bzw. EH-Copolymere zeichnen sich aufgrund ihrer definierten Seitenkettenstruktur durch elastomere Eigenschaften aus. Ihr Nachteil besteht jedoch in der niedrigen Kristallitschmelztemperatur von nur ca. 60°C, der ihren Anwendungsbereich beschränkt. Zur Erhöhung der Temperaturformbeständigkeit werden sie häufig vernetzt. Eine häufig verwendete Vernetzungsmethode für EO-Copolymere ist die Organosilanvernetzung. Die Silanvernetzung von EO- bzw. EH-Copolymeren besteht aus zwei Reaktionsschritten, nämlich aus einer peroxidradikalinitiierten Silanpfpungsreaktion und aus einer nachfolgenden Vernetzung der gepfpften Kettenmoleküle über Siloxanbrücken, welche im Zuge einer Hydrolyse- und Kondensationsreaktion gebildet werden. Im Zuge des Silanpfpungsreaktions schritts erfolgt eine EO-Copolymer-Kettenaktivierung durch Einwirken von Radikalen organischer Peroxide, welche eine Wasserstoffabstraktion am Makromolekül initiieren. Durch Aufbrechen der in den Organosilanen enthaltenen Vinylgruppen-Doppelbindungen erfolgt eine kovalente Ankopplung der Organosilanmoleküle, beispielsweise von Vinyltrimethoxysilan (VTMOS) an die EO- bzw. EH-Copolymerketten. Eine Vernetzung dieses zunächst noch thermoplastischen und silangepfpften Materials erfolgt durch eine Hydrolyse- und Kondensationsreaktion, die sich beide beispielsweise mittels Dibutylzinndilaurat (DBTL) katalysieren lassen.

[0004] Durch die Organosilanvernetzung lassen sich die Wärmeformbeständigkeit und Elastizität der Polyolefinelastomeren, beispielsweise EO- bzw. EH-Copolymeren, im Vergleich zum unvernetzten Polymeren verbessern. Aber für manche Anwendungen haben die organosilanvernetzten Polyolefinelastomere folgende Nachteile:

- große Schrumpfung
- hohe Öl-Quellung
- niedrige Reißfestigkeit.

[0005] In der DE-OS 198 23 142 A1 wird die Herstellung von elastischen Fäden, Folien, textile Flächengebilde und Hybridstrukturen mit hohem Schrumpfvermögen aus EO-Copolymeren beschrieben. Im Zuge ihrer Herstellung wird zunächst Organosilan mittels eines Zweischnellenextruders auf die Makromoleküle des EO-Copolymers aufgepfropft. Anschließend wird die silangepfpfte EO-Copolymerschmelze durch eine thermoplastische Verarbeitung zu elastischen Fäden bzw. Folien, textilen Flächen und Hybridstrukturen ausgeformt. Die Vernetzung erfolgt im Festzustand unter Formfixierung durch eine Hydrolyse- und Kondensationsreaktion des aufgepfropften Organosilans. Diese Produkte haben einen hohen Schrumpf ($S > 30\%$) und können nur als schrumpffähige Produkte verwendet werden.

[0006] In dem EP 0 743 862 B1 wird ein organosilangepfpftes und vernetzbares Polyolefin oder Polyolefinelastomer zur Herstellung dampfsterilisierbarer medizinischer Instrumente beschrieben. Auch hierbei wird die Organosilanpfpung des Polymers mittels eines Zweischnellenextruders durchgeführt. Aus dem silangepfpften Polymer werden medizinische Instrumente mittels den üblichen Methoden der Thermoplastverarbeitung hergestellt. Anschließend werden diese Produkte im Wasserbad oder in feuchter Umgebung vernetzt. Ein hoher Vernetzungsgrad ($85\% < \text{Gelgehalt} < 95\%$) ist eine Voraussetzung für die erwünschte bzw. angestrebte hohe Temperaturformbeständigkeit. Das vernetzte Polymermaterial der medizinischen Instrumente kann bei einer Temperatur von $T = 122^\circ\text{C}$ über 20 min problemlos dampfsterilisiert werden. In diesem Patent gibt es keine Angabe über die mechanischen Eigenschaften der stark vernetzten Polyolefinelastomere. Es ist bekannt, dass die mechanischen Eigenschaften der vernetzten EO-Copolymere von dem realisierten Vernetzungsgrad abhängig sind. Bei dem stark vernetzten EO-Copolymer nehmen erfahrungsgemäß die Reißfestigkeit und Reißdehnung mit steigendem Vernetzungsgrad ab. Deshalb bleibt die Frage offen wie sich die mechanischen Eigenschaften solcher vernetzter EO- bzw. EH-Copolymere verbessern lassen.

[0007] Die EP 0 510 559 B1 beschreibt die Herstellung eines thermoplastischen vukanisierten Elastomers, das aus einem kristallinen thermoplastischen Polyolefin, welches eine kontinuierliche Phase bildet, und einem organosilanvernetzten Polyolefinelastomer als disperse Phase und besteht. Durch die Organosilanvernetzung der Elastomerphase kann gegenüber einfachen Kunststoff/Kautschuk-Mischungen, welche physikalische Blends darstellen, eine deutliche Verbesserung der technologischen Eigenschaften solcher Zweiphasenwerkstoffe erreicht werden.

[0008] Der Ölquellungswert ist ein wichtiger Parameter für die Verwendungen derartiger Elastomeren. Zwar lässt sich durch eine Vernetzung der Elastomerphase und eine Variation des Kristallinitätsgrades der kontinuierlichen Polyolefinmatrix z. B. Polypropylen, der Ölquellungswert reduzieren. Dies bedeutet aber eine nicht immer akzeptable Einschränkung.

[0009] Die Aufgabe der Erfindung besteht darin, den eingangs beschriebenen Polyolefinelastomerwerkstoff so zu modifizieren, dass die mechanischen Eigenschaften des Werkstoffs bzw. der daraus hergestellten Produkte deutlich verbessert werden.

[0010] Diese Aufgabe wird bei den eingangs genannte Polymerwerkstoffen erfindungsgemäß dadurch gelöst, dass das Polymerblend eine kontinuierliche Phase aus einem Polyolefinelastomer und eine darin dispergierte, zweite Phase aufweist, deren Komponenten ausgewählt sind aus einem Polyester, einem Polyesterelastomer und einem aktiven Füllstoff, wobei der Anteil der kontinuierlichen Polyolefinelastomerphase 80 bis 95 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Polymerblends, beträgt.

[0011] Die erfindungsgemäßen, gleichfalls vernetzten Polymerblends weisen durch das reaktive Compoundieren mit einer verträglichen Zweitpolymerkomponente und/oder einem aktiven, d. h. kovalent koppelbaren, vorzugsweise feinstdispersen Füllstoff im Vergleich zu vernetzten Copolymer-Elastomeren folgende Vorteile auf:

- höhere Einsatztemperaturen
- verbesserte mechanische Eigenschaften
- niedrigere Ölquellung
- reduzierter Schrumpfwert.

[0012] Bevorzugte Polyolefinelastomere sind Ethylen/Octen-Copolymere, Ethylen/Hexen-Copolymere, EPDM und EPM.

[0013] Die zweite dispergierte Komponente, soweit sie ein Polyester ist, ist bevorzugt Polybutylenterephthalat (PBT). Im Falle dass als dispergierte Komponente ein Polyester-Elastomer ausgewählt wird, wird bevorzugt "Hytrel" der Fa. DuPont oder "Arnitel" der Fa. DSM verwendet.

[0014] Im Falle der Verwendung von aktiven Füllstoffen, werden bevorzugt pyrogenes Siliciumdioxid, Aerosil, und Silicate eingesetzt. Bevorzugte aktive Füllstoffe weisen an der Oberfläche der Partikel SiOH- Oder SiOR-Gruppen auf. Als feinstdisperse Füllstoffe eignen sich besonders hochdisperse, pyrogene Kieselsäure (Aerosile) oder Silicate. Hierbei handelt es sich um amorphe, kugelförmige Partikel, auf deren Oberfläche SiOH- oder SiOR-Gruppen vorhanden sind. Deshalb können diese Teilchen im Zuge einer Kondensationsreaktion zwischen den Hydroxygruppen bei der Vernetzung des Matrixpolymers kovalent mit diesem gekoppelt werden.

[0015] Wird die zweite dispergierte Komponente aus Polyestern oder Polyesterelastomeren ausgewählt, lässt sich das Eigenschaftsspektrum der Werkstoffe verbessern, wenn dem Werkstoffgemisch beim Compoundierprozess ein Haftvermittler zugegeben wird, welcher bevorzugt aus der Gruppe ausgewählt wird, die besteht aus 3-Glycidylxypropyltrimethoxysilan (GLYMO), Glycidylmethacrylate (GMA), Allylglycidether (AGE), 3-Aminopropyltrimethoxysilan (AMMO). Diese Agenzien enthalten zwei funktionelle End-Gruppen, die in der Lage sind, mit den funktionellen Gruppen der beiden Polymerkomponenten chemisch zu reagieren, wodurch eine kovalente Verknüpfung der Blendkomponenten geschaffen wird. Während GMA und AGE je eine Vinylgruppendifferenzierung und eine Epoxidgruppe aufweisen, sind GLYMO und AMMO durch jeweils eine Trimethoxysilangruppe sowie eine Epoxid- und eine Aminogruppe gekennzeichnet.

[0016] Bevorzugt umfasst das erfindungsgemäße Polymerblend die verschiedenen Komponenten in folgenden Anteilen:

- (a) 80–95 Gew.anteile thermoplastisches Polyolefinelastomer,
- (b) 5–20 Gew.anteile zweite Polymerkomponente und/oder aktiver Füllstoff,
- (c) 1–3 Gew.anteile Organosilan pro 100 Gew.anteile der Komponente (a),
- (d) 1–3,5 Gew.anteile Peroxid pro 100 Gew.anteile der Komponente (c),
- (e) 0,005–0,05 Gew.anteile eines Vernetzungskatalysators (bevorzugt Dibutylzinndilaurat DBTL) pro 100 Gew.anteile der Komponente (a),
- (f) 0,5–2 Gew.anteile Haftvermittler pro 100 Gew.anteile der Komponente (b).

[0017] Überraschenderweise wurde gefunden, dass durch die reaktive Compoundierung des Polyolefinelastomers mit den weniger als 20 Gew.-% der zweiten Komponente (entweder Polyester oder Aerosil) die technologischen Eigenschaften des modifizierten Polyolefinelastomers sowohl im vernetzten Zustand als auch im thermoplastischen Zustand deutlich verbessert werden. Die Reißfestigkeit, Reißdehnung und Temperaturformbeständigkeit werden erhöht. Die Schrumpfwerte bei der Formgebung derartiger Materialien und die Ölquellungswerte werden stark reduziert.

[0018] Es war insbesondere überraschend, dass trotz einer größeren Polydispersität durch das Blenden mit der zweiten Polymerkomponente oder mit dem aktiven Füllstoff ein langzeitkonstanter Schmelzspinnprozess mit dem erfindungsgemäßen Material unter üblichen Schnellspinnungsgeschwindigkeiten (2.000–3.000 m/min.) möglich ist.

[0019] Die Erfindung betrifft ferner ein Verfahren zur Herstellung von elastischen Fäden mit einstellbarem thermomechanischem Eigenschaftsprofil, wobei ein Polymerblend, wie es zuvor detailliert beschrieben wurde, hergestellt wird, wobei dem Ethylen-Octen-Copolymeren vor und/oder während dem Compoundieren mit der zweiten Komponente Pfröpfungs- und Vernetzungsagentien zugegeben werden und eine matrixfunktionalisierte Mischung hergestellt wird und diese Mischung thermoplastisch zu Fäden verarbeitet wird.

[0020] Hierbei lässt sich der thermische Schrumpf bei niedrigen Temperaturen dadurch vermindern, dass eine zweite Komponente verwendet wird, welche Polybutylenterephthalat (PBT) umfasst. Mit zunehmendem PBT-Gehalt vermindert sich dabei der Schrumpf. Wendet man in Kombination mit dem Polybutylenterephthalat ein Polyesterelastomer als weiteren Bestandteil der zweiten Komponente an, dann kann man zusätzlich die thermische Stabilität der Fäden erhöhen. Dies gilt auch für Folien, textile Flächengebilde und Hybridstrukturen, die nach diesem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellt sind.

[0021] Die Erfindung betrifft schließlich elastische Fäden, welche aus dem erfindungsgemäßen Polymerblend hergestellt sind. Solche Fäden weisen die vorteilhafte Eigenschaft auf, dass deren thermomechanische Eigenschaften einstellbar sind.

BESCHREIBUNG DES VERFAHRENS ZUR HERSTELLUNG DER ERFINDUNGSGE-MÄSSEN MATERIALIEN

[0022] Die Herstellung der erfindungsgemäßen Materialien kann beispielsweise in einem reaktiven Blendprozess unter Verwendung eines gleichsinnig drehenden, dicht kämmenden Zweischneckenextruder erfolgen. Bei derartigen Compoundierextrudern sind sowohl die Zylindergehäuse als auch die Schneckenelemente modular konzipiert, so dass spezi-

fisch zugeschnittene Zylinderarrangements und Schneckenkonzepte verwirklicht werden können.

[0023] Eine Pfpfungslösung, umfassend Organosilan und Peroxid, wird in einem dichtschießenden Rhönrad-Mischgefäß auf das Polyolefinelastomergranulat aufgezogen und wird aufgrund des sehr niedrigen Kristallinitätsgrades von diesem spontan absorbiert. Das so vorbehandelte Granulat kann anschließend mittels einer gravimetrischen Dosierung in die erste Zone des Zweisneckenextruders eingespeist werden.

[0024] Ein flüssiger Haftvermittler wird mit der zweiten Komponente (Polyester) gleichfalls in einem dichtschießenden Rhönrad-Mischgefäß vorgemischt. Das mit Haftvermittler vorbehandelte Granulat wird mit Hilfe einer gravimetrischen Dosierung und eines zweiwelligen Seitenstromdosierers in die fünfte Zone des Extruders eingespeist. In der Entgasungszone, in der der Schneckenkanal nur teilweise gefüllt ist, werden nicht umgesetzte Monomere (z. B. Organosilan, Haftvermittler und Peroxid) aus der Polymerschmelze entfernt. Nach dem vollständigen Abschluss aller chemischen Reaktionen und der homogenen Compoundierung aller Komponenten lässt sich das behandelte Polymerblend direkt oder erst nach einer Abkühlungs- und Granulierungsstufe verarbeiten.

[0025] Die Vernetzungsreaktion erfolgt durch die Exposition der geformten Produkte (z. B. elastische Fäden bzw. Folien und textile Flächengebilde) in feuchter Umgebung oder durch Wasserlagerung. Um die Vernetzungsreaktion zu beschleunigen, ist es vorteilhaft, entweder den Vernetzungskatalysator (z. B. DBTL in einer Menge von 0,005 bis 0,05 Gew.anteile pro 100 Gew.-anteile des Polyolefinelastomeren) im Compoundierprozess mit Polymerschmelze zuzumischen oder den Vernetzungskatalysator (z. B. DBTL in einer Menge von 1 Gew.anteil pro 100 Wassergew.anteile) dem Wasserbad zuzugeben.

[0026] Die oben beschriebene Erfindung wird anhand der folgenden Beispiele noch näher erläutert.

Beispiel 1

Ausgangsstoffe

[0027] 100 Gew.teile Ethylen/Octen-Copolymer-Granulat (Engage 8200 von DuPont Dow Elastomers)

2 phr Vinyltrimethoxysilan (VTMOS)

0,04 phr 2,5-Dimethylhexan-2,5-dibutylperoxid (DHBP).

[0028] Das Ethylen/Octen-Copolymer-Granulat wurde mit einer Pfpfungslösung aus VTMOS und DHBP in einem Rhönrad-Mischer 30 min. lang gemischt. Anschließend wurden das so beladene Granulat mittels einer gravimetrischen Dosierung der Einfüllöffnung des Zweisneckenextruders zugeführt. Die Parameter der reaktiven Extrusion mittels einer ZSK 25 sind im Folgenden dargestellt:

Soll-Temperaturen der Extruderheizzone 1 bis 9: 140–210°C

Sneckenendrehzahl des Extruders: 150 min⁻¹

Massendurchsatz: 4 kg/h.

[0029] Im Extruder wird die peroxidisch initiierte Silanpfpfungsreaktion durchgeführt. Dadurch wurden Silanmoleküle auf die Ketten des Polymers aufgepfropft. Die silangepfropfte Polymerschmelze wurde schließlich in Form von Rundsträngen extrudiert.

[0030] Die Strangextrudate wurden mittels Luftkühlung verfestigt und anschließend granuliert.

Beispiel 2

Ausgangsstoffe

[0031] 100 Gew.teile Ethylen/Octen-Copolymer-Granulat (Engage 8200 von DuPont Dow Elastomers)

2 phr Vinyltrimethoxysilan (VTMOS)

0,04 phr 2,5-Dimethylhexan-2,5-dibutylperoxid (DHBP)

100 phr Polybutylenterephthalat (PBT) (Ultradur B 2550 von BASF AG)

2 phr Haftvermittler 3-Glycidyloxypropyltrimethoxysilan (GLYMO)

[0032] Das Ethylen/Octen-Copolymer-Granulat wird mit Pfpfungslösung aus VTMOS und DHBP in einem Rhönrad-Mischer 30 min lang gemischt. Anschließend wird das so beladene EO-Copolymer-Granulat mittels einer gravimetrischen Dosierung mit einem Massestrom von 4,5 kg/h der Einfüllöffnung des Zweisneckenextruders zugeführt. Das PBT-Granulat wird mit Haftvermittler in einem Rhönrad-Mischer 30 min lang gemischt. Das so beladene PBT-Granulat wird an der fünften Zone des Extruders mittels einer gravimetrischen Dosierung und eines Zweisnecken-Beschickungsextruders mit einem Massestrom von 0,5 kg/h dem Zweisneckenextruder zugeführt. Die homogene gemischte Polymerschmelze wurde schließlich in Form von Rundsträngen extrudiert. Das Strangextrudat wird mittels Luftkühlung verfestigt und anschließend granuliert. Das Gewichtsverhältnis EO-Copolymer : PBT in dem Blend betrug demnach 90 : 10. In den ersten fünf Zonen des Extruders erfolgte eine Pfpfung des Organosilans auf die Ketten des EO-Copolymers. In den folgenden Zonen werden die beiden Komponenten homogen vermischt, wobei die Kopplungsreaktion zwischen den Carboxy-Gruppen oder HO-Gruppen von PBT und den Epoxid-Gruppen des GLYMO erfolgt. GLYMO-Moleküle werden kovalent an die Ketten von PBT gekoppelt. Dadurch können EO-Copolymer und PBT bei der Silanvernetzung über Si-O-Si-Brücken kovalent gekoppelt werden. Die Parameter der reaktiven Compoundierung sind im Folgenden dargestellt:

Soll-Temperaturen der Extruderheizzone 1 bis 5 : 140–210°C

Soll-Temperaturen der Extruderheizzone 6 bis 9 : 230–250°C

Sneckenendrehzahl des Extruders: 150 min⁻¹

Beispiel 3

[0033] Beispiel 2 wird wiederholt mit der Abweichung, dass an Stelle des PBT Polyesterelastomer Hytrel G 4078 W (Hersteller: DuPont) als zweite Komponente eingesetzt wird. Das Gewichtsverhältnis EO-Copolymer : PEE in dem Blend betrug dabei 90 : 10.

5

Beispiel 4

[0034] Beispiel 2 wurde wiederholt mit der Abweichung, dass an Stelle des PBT und des Haftvermittlers ein aktiver Füllstoff Aerosil 200 als zweite Komponente eingesetzt wird. Bei der Silanvernetzung werden die Füllstoffteilchen, auf deren Oberfläche die SiOH- oder SiOR-Gruppen vorhanden sind, über Si-O-Si-Brücken kovalent mit Matrix-EO-Copolymer gekoppelt. Das Gewichtsverhältnis EO-Copolymer: Füllstoff in dem Blend betrug 90 : 10. Soll-Temperaturen der Extruderheizzonen 1 bis 9: 140–210°C

10

Vergleichs-Beispiel 5

15

[0035] Beispiel 4 wird wiederholt mit der Abweichung, dass an Stelle des Füllstoffes Aerosil ein anderer Füllstoff, nämlich Talkum, als zweite Komponente eingesetzt wird. Das Gewichtsverhältnis EO-Copolymer : Talkum in dem Polymer betrug demnach 90 : 10. Es existieren keine reaktiven Funktionsgruppen (z. B. SiOH- oder SiOR-Gruppen) auf der Oberfläche der Talkumpartikel. Ziel des Beispiels ist ein Vergleich des Effekts zwischen den erfindungsgemäßen aktiven Füllstoffen (Aerosilen) und herkömmlichen Füllstoffen.

20

[0036] Die gemäß den Beispielen 1 bis 5 hergestellten Blends werden durch Spritzgießen zu den für die einschlägigen Prüfverfahren benötigten Probekörpern verarbeitet. Nach der Vernetzung werden folgende Werte ermittelt:

Reißfestigkeit σ_B (in N/mm ²)	nach DIN 53504	25
Reißdehnung ϵ_B (in %)	nach DIN 53504	
Zugspannung bei 50% Dehnung σ_{50} (in N/mm ²)	nach DIN 53504	
Zugspannung bei 100% Dehnung σ_{100} (in N/mm ²)	nach DIN 53504	
Shore A-Härte	nach DIN 53505	
Öl-Quellung	nach DIN 53506	30

[0037] Dabei zeigt Tabelle 1 das Verhalten von Referenzmaterial (Beispiel 1) und einem erfindungsgemäßen Material (Beispiel 2) bei thermisch-mechanischer Belastung (bei 50°C).

[0038] Die Werte in der Tabelle 1 und das Verhalten in **Fig. 1** zeigen, dass die mechanischen Eigenschaften und Temperaturformbeständigkeit der erfindungsgemäßen Materialien im Vergleich zum Referenzmaterial verbessert werden. Der Ölquellungswert ist gegenüber dem Referenzmaterial gleichfalls reduziert.

35

Tabelle 1

Beispiel	σ_B (N/mm ²)	ϵ_B (%)	σ_{50} (N/mm ²)	σ_{100} (N/mm ²)	Shore A	Öl- Quellung (%)
1	11,5	454,2	3,4	4,9	75	506,0
2	14,2	483,0	4,3	6,0	75	440,0
3	15,0	588,0	4,1	5,6	78	-
4	15,2	566,0	4,0	5,3	78	294,0
5	11,8	409,6	4,5	6,3	78	-

40

45

50

55

Beispiel 6

60

Ausgangsstoffe

1. 100 Gew.teile einer Mischung aus
50 Gew.-% Ethylen/Octen-Copolymer (Engage 8200, der DuPont DOW Elastomers) und
50 Gew.-% Ethylen/Octen-Copolymer (Engage 8400, der DuPont DOW Elastomers)
2. 3 phr Vinyltrimethoxysilan
3. 0,086 phr Styrol
4. 0,12 phr 2,5-Dimethylhexan-2,5-dibutylperoxid (DHBP)

65

5. 5 bzw. 10 Gew.-% Polybutylenterephthalat (bezogen auf Gesamtmasse der Komponenten 1. bis 4.)

[0039] Die Engagepolymertypen liegen in Granulatform vor und werden mit den anderen Ausgangsstoffen im Extruder gemischt und aufgeschmolzen. Dabei findet die peroxidisch initiierte Organosilanpfropfung statt. Die funktionalisierte Schmelze wird mit schmelzeförmigem PBT, welches im Einschneckenextruder (Seitenstrangextruder) aufgeschmolzen und durch eine angeflanschte Spinnpumpe volumetrisch genau zudosiert wurde, in 5 bzw. 10 Ma% dotiert, um online dem Schmelzspinnkopf zugeführt zu werden.

[0040] Die Parameter der reaktiven Extrusion und des Schmelzspinnens sind folgende:

10 Doppelschneckenextruder

Zylindertemperatur T1–T7 = 235–280°C

$n_{\text{Extruder}} = 100 \pm 10 \text{ min}^{-1}$

$T_{\text{Schmelze}} = 239^\circ\text{C}$

15 $T_{\text{Spinnkopf}} = 245^\circ\text{C}$

$P_{\text{Extrusion}} = 3,5 \text{ Mpa}$

Düse 12 Loch $0,45 \times 0,9 \text{ mm}$

$Q_{\text{Spinn}} = 17,9 \text{ g/min}$

$T_{\text{Luft}} = 15,7^\circ\text{C}$

20 $V_{\text{Blasluft}} = 0,35 \text{ m/s}$

$P_{\text{Luft}} = 60\%$

[0041] Die Schmelze wird mit einem konstanten Volumenstrom durch die Düsenplatte extrudiert. Die Filamente werden einer auf Wasserbasis bestehenden Präparation zugeführt, die die Hydrolyse- und Kondensationsreaktion einleitet. Anschließend wird das Filamentbündel unter Variation der Abzugsgeschwindigkeit aufgewickelt.

25 **[0042]** Nach dem Aufwickeln der Fäden erfolgt die Matrixvernetzung der formfixierten Fäden auf der Spule in einem mit 1 Gew.-% DBTL versetzten Isopropanol-Wassergemisch.

[0043] Die Ergebnisse der Schrumpfmessung sind Fig. 2 zu entnehmen.

[0044] Die Schrumpfmessungen des silanvernetzten (Referenz) und des mit unterschiedlichem PBT-Gehalt versehenen und ebenfalls silanvernetzten Fadens sind in Fig. 2 repräsentiert. Die Fäden mit 5 Ma% und 10 Ma% PBT sind dabei die erfindungsgemäßen Fäden.

30 **[0045]** Fig. 3 zeigt die thermisch-mechanische Analyse der mit und ohne PBT geblendeten, silanfunktionalisierten Basis im vernetzten und unvernetzten Zustand. (Parameter: Heizrate 10 K/min., Vorspannung 0,025 cN/tex, Abzugsgeschwindigkeit 750 m/min.).

35 Beispiel 7

Ausgangsstoffe

1. 100 Gew.teile einer Mischung aus
- 40 50 Gew.-% Ethylen/Octen-Copolymer (Engage 8200. der DuPont DOW Elastomers) und
- 50 Gew.-% Ethylen/Octen-Copolymer (Engage 8400. der Dupont DOW Elastomers)
2. 3 phr Vinyltrimethoxysilan
3. 3/35 phr 2,5-Dimethylhexan-2,5-dibutylperoxid (DHBP)
4. 0,12 phr Styrol
- 45 5. 5 Ma% Aerosil

[0046] Die Vorgehensweise ist wie im Beispiel 1. Anstelle des schmelzeförmigen PBT wird das pulverförmige Aerosil zudosiert.

[0047] Die Parameter der reaktiven Extrusion und des Schmelzspinnens sind wie folgt:

50 Zylindertemperatur T1–T7 = 235°C

$n_{\text{Extruder}} = 10 \text{ min}^{-1}$

$T_{\text{Schmelze}} = 240^\circ\text{C}$

$T_{\text{Spinnkopf}} = 235^\circ\text{C}$

$P_{\text{Extrusion}} = 3,5 \text{ Mpa}$

55 Düse 12 Loch $0,45 \times 0,9 \text{ mm}$

$Q_{\text{Spinn}} = 17,8 \text{ g/min}$

$T_{\text{Luft}} = 15,7^\circ\text{C}$

$V_{\text{Blasluft}} = 0,35 \text{ m/s}$

$P_{\text{Luft}} = 60\%$

60 **[0048]** Fig. 4 und 5 zeigen die erfindungsgemäßen Fäden, die gegenüber den nicht mit Aerosil gefüllten Blends eine erhöhte physikalische Bruchspannung aufweisen und gleichzeitig einen reduzierten thermischen Schrumpf besitzen.

Patentansprüche

- 65 1. Polymerblend, umfassend eine kontinuierliche Phase aus einem Polyolefinelastomer und eine darin dispergierte Phase, umfassend einen Polyester, ein Polyesterelastomer und/oder einen aktiven Füllstoff, wobei der Anteil der kontinuierlichen Polyolefinelastomerphase 80 bis 95 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Polymerblends, beträgt.

2. Polymerblend gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die kontinuierliche Polyolefinelastomerphase ein Ethylen/Octen-Copolymer, ein Ethylen/Butylen-Copolymer, EPM-Elastomer oder EPDM-Elastomer umfasst.
3. Polymerblend gemäß Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass das Polyolefinelastomer der kontinuierlichen Phase durch Organosilan gepfropft und gegebenenfalls vernetzt ist.
4. Polymerblend gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass der aktive Füllstoff pyrogene Kieselsäure, Aerosile oder Silicate umfasst. 5
5. Polymerblend gemäß Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass der Füllstoff der dispergierten Phase auf der Oberfläche SiOH- oder SiOR-Gruppen aufweist.
6. Polymerblend gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass in der dispergierten Phase Polyester und/oder Polyesterelastomer durch einen Haftvermittler nach der Silanvernetzung mit der kontinuierlichen Phase entweder kovalente Bindungen oder Wasserstoffbrückenbindungen verknüpft sind. 10
7. Polymerblend gemäß Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass der Haftvermittler epoxydierte Vinylmonomere, epoxydierten Organosilane, insbesondere 3-Glycidyloxypropyltrimethoxysilan (GLYMO), Glycidyl Methacrylate (GMA), Allylglucidether (AGE) oder 3-Aminopropyltrimethoxysilan (AMMO) umfaßt.
8. Verfahren zur Herstellung eines Polymerblends gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass zuerst das die kontinuierliche Phase bildende Polyolefinelastomer mit einem Organosilan gepfropft und anschließend mit einer die zweite, dispergierte Phase bildenden Komponente, ausgewählt aus Polyestern, Polyesterelastomeren und/oder aktiven Füllstoffen sowie gegebenenfalls mit einem Haftvermittler compoundiert wird. 15
9. Verfahren zur Herstellung eines Polymerblends nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass nach der Organosilanvernetzungsreaktion die organosilangepfropfte kontinuierliche Polyolefinelastomerphase und die zweite, dispergierte Phase mittels eines Haftvermittlers miteinander unter Bildung von kovalenten Bindungen gekoppelt werden. 20
10. Verfahren zur Herstellung eines Polymerblends nach Anspruch 8 oder 9, dadurch gekennzeichnet, dass nach der Organosilanvernetzungsreaktion die organosilangepfropfte kontinuierliche Polyolefinelastomerphase und ein aktiver Füllstoff miteinander unter Bildung von kovalenten Bindungen gekoppelt werden. 25
11. Verfahren zur Herstellung von elastischen Fäden mit einstellbarem thermo-mechanischem Eigenschaftsprofil, wobei ein Polymerblend gemäß einem der Ansprüche 8 bis 10 hergestellt wird, wobei dem Ethylen-Octen-Copolymeren vor und/ oder während dem Compoundieren mit der zweiten Komponente Pfropfungs- und Vernetzungsagenzien zugegeben werden und eine matrixfunktionalisierte Mischung hergestellt wird und diese Mischung thermoplastisch zu Fäden verarbeitet wird. 30
12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Komponente Polybutylenterephthalat zur Verminderung des thermischen Schrumpfs umfasst.
13. Verfahren nach Anspruch 11 oder 12, dadurch gekennzeichnet, dass die zweite Komponente Polybutylenterephthalat und/oder ein Polyesterelastomer umfaßt zur Erhöhung der thermischen Stabilität der Fäden.
14. Elastische Fäden, hergestellt unter Verwendung eines Polymerblends gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7. 35

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

40

45

50

55

60

65

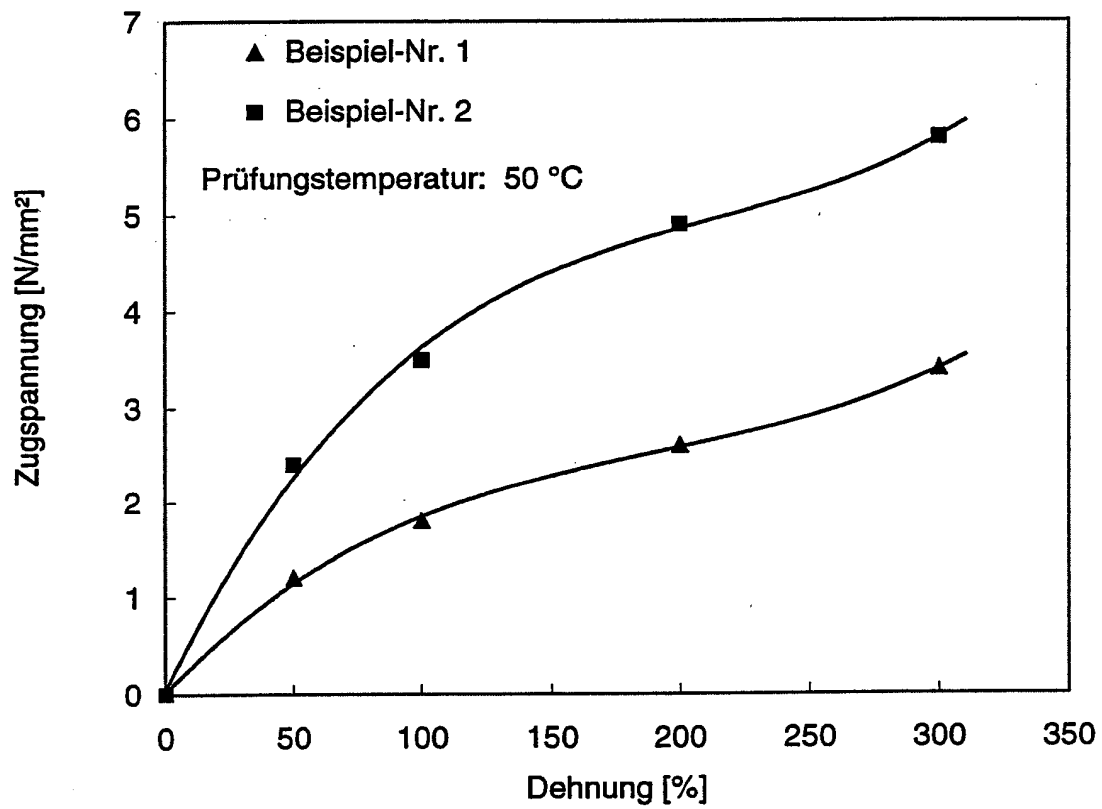
Fig. 1

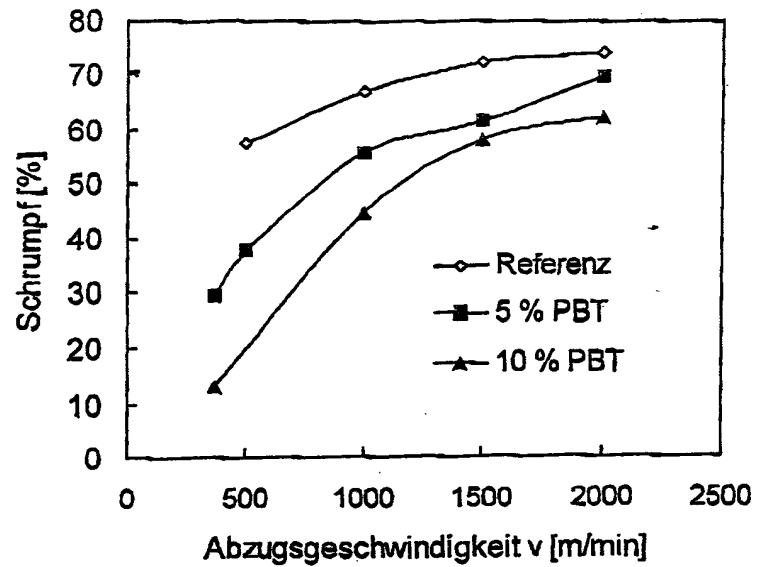
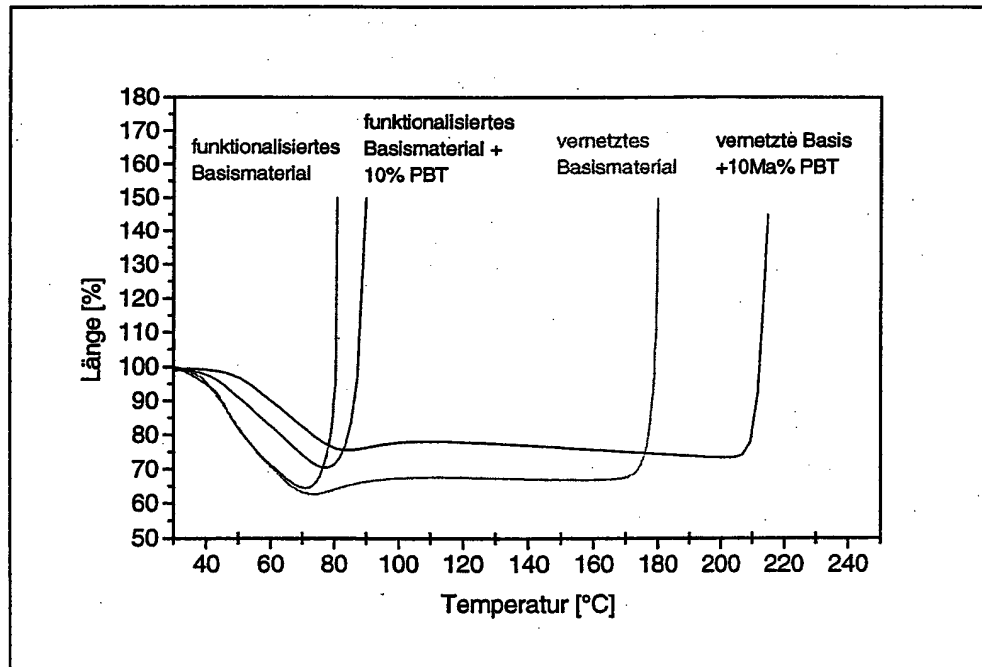
Fig. 2**Fig. 3**

Fig. 4

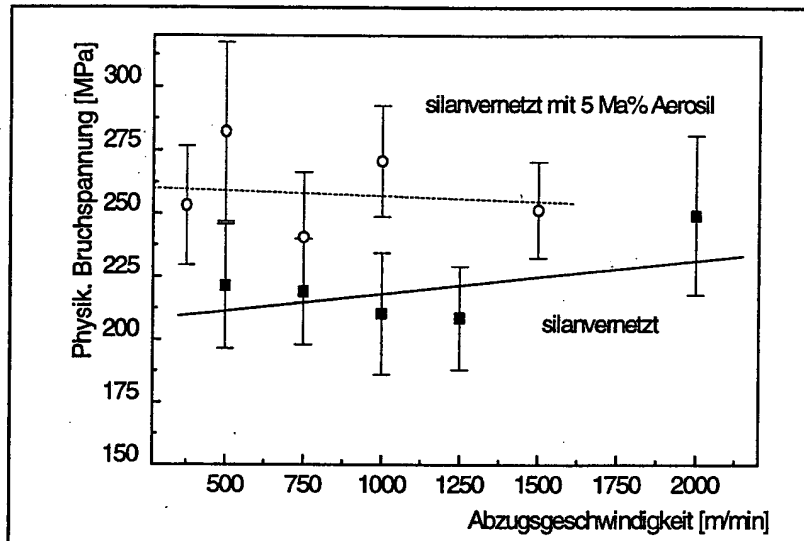


Fig. 5

